



(12)

# Offenlegungsschrift

(21) Aktenzeichen: 102 44 284.3

(22) Anmeldetag: 23.09.2002

(43) Offenlegungstag: 01.04.2004

(51) Int Cl.7: **B29C 44/14** 

B29C 39/10, B29C 45/00, B29C 45/14, B29C 70/00, C08J 5/04, C08J 5/18

(71) Anmelder:

BASF AG, 67063 Ludwigshafen, DE

(72) Erfinder:

Erfinder wird später genannt werden

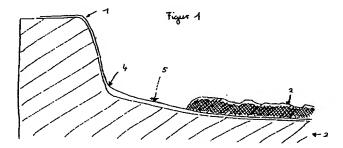
## Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

(54) Bezeichnung: Verfahren zur Herstellung dellenfreier Verbundelemente

(57) Zusammenfassung: Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung eines Verbundelements, aufgebaut aus

i) einer Folie und

ii) einer Schicht aus faserverstärktem Polyurethan, wobei ein Einbringen von Polyurethansystemkomponenten derart erfolgt, dass ein 10 bis 300 mm breiter Randstreifen auf der Folienoberfläche nicht von Polyurethansystemkomponenten benetzt wird, sowie dellenfrei Verbundelemente, erhältlich nach dem erfindungsgemäßen Verfahren.



#### **Beschreibung**

[0001] Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung eines Verbundelementes, aufgebaut aus

- i) einer Folie und
- ii) einer Schicht aus faserverstärktem Polyurethan.

wobei ein Einbringen von Polyurethansystemkomponenten derart erfolgt, dass ein 10 bis 300 mm breiter Randstreifen auf der Folienoberfläche nicht von Polyurethansystemkomponenten benetzt wird, sowie dellenfrei Verbundelemente, erhältlich nach dem erfindungsgemäßen Verfahren.

[0002] EP-A-995 667 und EP-A-1 077 225 beschreiben die Herstellung von Automobilaußenbauteilen, wie Dachmodulen, Motorhauben etc., wobei tiefgezogene eingefärbte thermoplastische Folien oder Metallfolien mit glasfaserverstärktem Polyurethan (PUR) verstärkt werden.

[0003] Die tiefgezogenen Folien verlaufen in der Regel nicht exakt nach der Kontur des Formwerkzeugs. Dadurch wird ein Luftpolster zwischen Folie und Formwerkzeug gebildet. Bei vollflächigen GF-PUR Eintrag kann die eingeschlossene Luft während des PUR Aufschäumens nicht zwischen der Folie und dem Werkzeug entweichen. Die so eingeschlossene Luft wird partiell komprimiert, der Schäumdruck ist niedriger als der Luftdruck zwischen Folie und Werkzeug, es kommt zur Ausbeulung der Folie in Richtung GF-PUR. Diese Delle bleibt auf der Folienoberfläche nach der Entformung des Bauteils sichtbar.

[0004] Aufgabe der Erfindung war es daher, ein Verfahren zur Herstellung von dellenfreien Verbundelementen, insbesondere zur Verwendung als Karosserieaußenteilen, bereit zu stellen.

[0005] Gegenstand der Erfindung ist daher ein Verfahren zur Herstellung eines Verbundelementes, aufgebaut aus

- i) einer Folie und
- ii) einer Schicht aus faserverstärktem Polyurethan, umfassend die Schritte
- A) Einlegen einer Folie (i) in ein geöffnetes Formwerkzeug,
- B) Einbringen von Polyurethansystemkomponenten in das Formwerkzeug auf die eingelegte Folie (i),
- C) Schließen des Formwerkzeugs und Reaktion der eingebrachten Polyurethansystemkomponenten zu einem Polyurethan (ii), und
- D) gegebenenfalls Abtrennen von überstehender Folie,

dadurch gekennzeichnet, dass das Einbringen der Polyurethansystemkomponenten im Schritt (B) derart erfolgt, dass ein 10 bis 300 mm breiter Randstreifen auf der Folienoberfläche nicht von Polyurethansystemkomponenten benetzt wird, wobei sich die Breite des Randstreifens auf den Rand des resultierenden

Verbundelements bezieht.

[0006] Weiterhin ist Gegenstand der Erfindung ein dellenfreies Verbundelement, erhältlich nach dem erfindungsgemäßen Verfahren und die Verwendung des Verbundelementes zur Herstellung von dellenfreien Karosserieaußenteilen, insbesondere von dellenfreien Dachmodulen.

[0007] Unter dellenfrei wird im Rahmen dieser Erfindung verstanden, dass bei optischer Betrachtung des hergestellten Verbundelements keine Unebenheiten, insbesondere keine Erhebungen oder Einbuchtungen der Folie (i) erkennbar sind, d.h. die Folie ist planar auf der Verstärkungsschicht angeordnet.

[0008] Die nach dem erfindungsgemäßen Verfahren erhältlichen Verbundelemente finden bevorzugt als Karosserieaußenteile Verwendung, insbesondere als Dachmodule für Automobile und weisen vorzugsweise eine flächige Struktur auf. Die Dicke des Verbundelements, insbesondere Dachmoduls, beträgt vorzugsweise 2 bis 100 mm, weiter bevorzugt 5 bis 30 mm und besonders bevorzugt 8 bis 20 mm. Die Flächengröße der flächigen Verbundelemente ist im allgemeinen nicht begrenzt, bevorzugt weisen die flächigen Verbundelemente ein Flächengröße von 0,1 bis 10 m², bevorzugt von 1 bis 5 m² auf, besonders bevorzugt von 1,2 bis 3 m² auf.

[0009] Als Folie (i) wird im allgemeinen eine thermoplastische Folie oder eine Metallfolie verwendet.

[0010] Als thermoplastische Folie (i) können allgemein bekannte Folien eingesetzt werden, beispielsweise übliche Folien auf der Basis von Acrylnitril-Butadien-Styrol (ABS), Polymethylmethacrylat (PMMA), Acrylnitril-Styrol-Acrylester (ASA), Polycarbonat (PC), thermoplastischem Polyurethan, Polypropylen, Polyethylen, und/oder Polyvinylchlorid (PVC). Bevorzugt wird als thermoplastische Folie (i) eine Zweischichtfolie, wobei die erste Schicht auf PMMA und die zweite Schicht auf ASA und/oder PC basiert, verwendet. Setzt man Zweischichtfolie ein, so haftet das Polyisocyanat-Polyadditionsprodukte bevorzugt an ASA und/oder ASA/PC.

[0011] Als Metallfolie (i) kommen alle üblichen Metallfolien in Betracht, bevorzugt verwendet man eine Aluminiumfolie oder eine Stahlfolie, insbesondere eine sogenanntes Aluminium-Coil-Coating.

[0012] Derartige Folien sind kommerziell erhältlich und ihre Herstellung ist allgemein bekannt. Die Folien weisen im allgemeinen eine Dicke von 0,1 bis 5 mm, bevorzugt von 0,5 bis 2 mm, besonders bevorzugt von 0,6 bis 1,0 mm auf.

[0013] Die Verstärkungsschicht (ii) besteht aus faserverstärktem, bevorzugt glasfaserverstärktem Polyurethan und dient als Träger, der dem Verbundbauteil vorteilhafte mechanische Eigenschaften, wie beispielsweise hohe Festigkeit, verleiht. Unter faserverstärktem Polyurethan versteht man PUR, das Fasern zur Verstärkung enthält, wobei diese Fasern bevorzugt so beschaffen sind, dass sie nicht über einen herkömmlichen Hochdruckmischkopf verarbeitbar sind. Die Fasern können beispielsweise durch das

aus dem Stand der Technik bekannte LFI-Verfahren (Long Fiber Injection) in die Polyurethansystemkomponenten eingebracht werden und weisen im allgemeinen eine Länge von mehr als 5 mm, bevorzugt von mehr als 10 mm, besonders bevorzugt von 10 mm bis 10 cm auf. Gegebenenfalls ist es auch möglich, die Langfasern in Form von Matten in das Polyurethan einzubringen.

[0014] Bei den verwendeten Langfasern kann es sich um Glasfasern, Naturfasern, wie beispielsweise Flachs, Jute oder Sisal, Kunstfasern, wie beispielsweise Polyamidfasern, Polyesterfaser, Carbonfasern oder Polyurethanfasern handeln. Bevorzugt werden Glasfasern verwendet.

[0015] Die Fasern zur Verstärkung werden üblicherweise in einer Menge von 0,1 bis 90 Gew.-%, bevorzugt von 1 bis 50, mehr bevorzugt von 5 bis 40 und besonders bevorzugt von 10 bis 30 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht der Schicht ii) eingesetzt.

[0016] Die Schicht ii) weist üblicherweise eine Dichte von 0,1 bis 1,3 kg/l, bevorzugt von 0,2 bis 1,1kg/l, besonders bevorzugt von 0,3 bis 1,0 kg/l. Zur Erreichung dieser Dichte werden kompakte oder zellige Polyurethane eingesetzt, wobei Polyurethanhartschäume bevorzugt verwendet werden.

[0017] Die Dicke der Schicht ii) in den erfindungsgemäßen Verbundbauteilen beträgt üblicherweise 0,1 bis 100 mm, bevorzugt 0,5 bis 25 mm, mehr bevorzugt 1 bis 20 mm, besonders bevorzugt 1 bis 10 mm. [0018] Bei den erfindungsgemäßen Verbundbauteilen liegt bevorzugt Haftung zwischen Schicht i) und Schicht ii) vor, d.h. die Adhäsion zwischen den Schichten ist bevorzugt größer als die Kohäsion innerhalb einer Schicht.

[0019] Die Deckschicht, d.h. der Verbund aus Außenschicht (i) und Verstärkungsschicht (ii) weist bevorzugt eine Zugfestigkeit nach DIN EN 61 von 10 bis 21 N/mm², ein Zug E-Modul nach DIN EN 61 von 1200 bis 4000, besonders bevorzugt von 1500 bis 3600 N/mm², eine Schlagzähigkeit nach DIN 53 453 von 14 bis 90 kJ/m² (bzw. kein Brechen der Probekörper bei Raumtemperatur), ein Biege E-Modul nach DIN EN 63 von 1400 bis 4000 N/mm² und/oder eine Biegefestigkeit nach DIN EN 63 von 30 bis 90 N/mm² auf.

[0020] Der Begriff Polyurethan umfasst im Rahmen der vorliegenden Erfindung jegliche Polyisocyanat-Polyadditionsprodukte, wie beispielsweise Polyurethan und/oder Polyisocyanurat. Diese sind im allgemeinen erhältlich durch Umsetzung von (a) Polyisocyanaten mit (b) Polyolen, gegebenenfalls in Gegenwart von (c) Katalysatoren, (d) Treibmitteln, (e) Hilfs- und Zusatzstoffen. Als Polyurethansystemkomponenten werden im Rahmen dieser Erfindung zwei Komponenten verstanden, wobei die erste im allgemeinen Polyisocyanate (a), gegebenenfalls in Form von Polyisocyanat-Prepolymeren, umfasst (sogenannte Isocyanatkomponenten), und die zweite Komponente im allgemeinen Polyole (b) und (c) Katalysatoren, (d) Treibmittel, (e) Hilfs- und Zusatzstoffe

(sogenannte Polyolkomponente). Diese beiden Polyurethankomponenten werden als Flüssigkeiten in eine Form eingebracht, dort reagieren sie zu Polyurethanen, bevorzugt zu Polyurethanschaumstoffen.

[0021] Als Polyisocyanate (a) können allgemein bekannte (cyclo)aliphatische und/oder insbesondere aromatische Polyisocyanate eingesetzt werden. Zur Herstellung der erfindungsgemäßen Formteile eignen sich besonders aromatische Diisocyanate, vorzugsweise Diphenylmethandiisocyanat (MDI) und Toluylendiisocyanat (TDI). Die Isocyanate können in Form der reinen Verbindung oder in modifizierter Form, beispielsweise in Form von Uretdionen, Isocyanuraten, Allophanaten oder Biureten, vorzugsweise in Form von Urethan- und Isocyanatgruppen enthaltenden Umsetzungsprodukten, sogenannten Polyisocyanat-Prepolymeren, eingesetzt werden. Sofern Polyisocyanatprepolymere verwendet werden, weisen diese im allgemeinen eine NCO-Gehalt von 8 bis 25 %, bevorzugt von 12 bis 20 % auf.

[0022] Als (b) Polyole werden im Rahmen dieser Erfindung alle Verbindungen mit mindestens zwei gegenüber Isocyanatgruppen reaktiven Wasserstoffatomen verstanden, wobei die reaktiven Wasserstoffatome bevorzugt ausgewählt sind aus OH-Gruppen, SH-Gruppen, NH-Gruppen, NH<sub>2</sub>-Gruppen und CH-aciden Gruppen, wie z.B. β-Diketo-Gruppen. Beispiele für Verbindungen, die unter die Komponente (b) fallen sind Polycarbonatdiole, Polyetherpolyole und/oder Polyesterpolyole, im Folgenden werden Verbindungen der Komponente (b) als "Polyole" bezeichnet.

[0023] Bevorzugt sind Polyole mit einer Funktionalität von 2 bis 8, insbesondere von 2 bis 4, einer Hydroxylzahl von 20 bis 1000 mg KOH/g, bevorzugt von 25 bis 500 mg KOH/g, sowie 10 bis 100 % primären Hydroxylgruppen. Die Polyole weisen im allgemeinen ein Molekulargewicht von 400 bis 10000 g/mol, bevorzugt von 600 bis 6000 g/mol auf. Polyetherpolyole sind aufgrund ihrer höheren Hydrolysestabilität besonders bevorzugt.

[0024] In einer bevorzugten Ausführungsform wird ein Gemisch aus mindestens zwei Polyetherpolyolen verwendet, wobei das erste Polyetherpolyol eine OH-Zahl von 20 bis 50, bevorzugt von 25 bis 40, aufweist und das zweite Polyetherpolyol eine OH-Zahl von 100 bis 350, bevorzugt von 180 bis 300, aufweist, wobei im allgemeinen das Gewichtsverhältnis vom ersten zum zweiten Polyetherpolyol 99: 1 bis 80: 20 beträgt.

[0025] Geeignete Polyetherpolyole werden zumeist durch basisch katalysierte Anlagerung von niederen Alkylenoxiden, insbesondere Ethylenoxid und/oder Propylenoxid, an 2 bis 8-funktionelle, insbesondere 2 bis 4-funktionelle Startsubstanzen, hergestellt.

[0026] Der Gehalt an primären Hydroxylgruppen kann erreicht werden, indem man die Polyole zum Abschluss mit Ethylenoxid umsetzt.

[0027] Als Polyetherpolyole (b) können weiterhin sogenannte niedrig ungesättigte Polyetherole ver-

wendet werden. Unter niedrig ungesättigten Polyolen werden im Rahmen dieser Erfindung insbesondere Polyetheralkohole mit einem Gehalt an ungesättigten Verbindungen von kleiner als 0,02 meq/g, bevorzugt kleiner als 0,01 meq/g, verstanden. Derartige Polyetheralkohole werden zumeist durch Anlagerung von Alkylenoxiden, insbesondere Ethylenoxid, Propylenoxid und Mischungen daraus, an mindestens difunktionelle Alkohole in Gegenwart von sogenannten Doppelmetallcyanidkatalysatoren hergestellt.

[0028] Zu den gegenüber Isocyanaten reaktiven Verbindungen (b) können auch Kettenverlängerungsund/oder Vernetzungsmitteln gehören. Bei den Kettenverlängerungsmitteln handelt es sich überwiegend um zwei- oder drei funktionelle Alkohole mit Molekulargewichten von 60 bis 399, beispielsweise Ethylenglykol, Propylenglykol, Butandiol-1,4, Pentandiol-1,5. Bei den Vernetzungsmitteln handelt es sich um Verbindungen mit den Molekulargewichten von 60 bis 499 und 3 oder mehr aktiven H-Atomen, vorzugsweise Aminen und besonders bevorzugt Alkoholen, beispielsweise Glyzerin, Trimethylolpropan und/oder Pentaerythrit.

[0029] Als Katalysatoren (c) können übliche Verbindungen eingesetzt werden, welche die Reaktion der Komponente (a) mit der Komponente (b) stark beschleunigen. In Frage kommen beispielsweise tertiäre Amine und/oder organische Metallverbindungen, insbesondere Zinnverbindungen. Bevorzugt werden als Katalysatoren solche eingesetzt, die zu einem möglichst geringen Fogging, d.h. zu einer möglichst geringen Abgabe von flüchtigen Verbindungen aus dem Polyisocyanat-Polyadditionsprodukt führen, beispielsweise tertiäre Amine mit reaktiven Endgruppen und/oder höher siedende Aminkatalysen. Beispielsweise können als Katalysatoren folgende Verbindungen eingesetzt werden: Triethylendiamin, Aminoalkylund/oder Aminophenyl-imidazole, zum Beispiel 4-Chlor-2, 5-Dimethyl-1-(N-methylaminoethyl)-imidazol, 2-Aminopropyl-4, 5-Dimethoxy-1-methylimidazol, 1-Aminopropyl-2,4,5-tributylimidazol, 1-Aminoethyl-4-hexylimidazol, 1-Aminobutyl-2, 5-Dimethylimidazol, 1-(3-Aminopropyl)-2-ethyl-4-methylimidazol, 1-(3-Aminopropyl)imidazol und/oder 1-(3-Aminopropyl)-2-methylimidazoi, Zinn-(II) salze von organischen Carbonsäuren, zum Beispiel Zinn-(II)-diacetat, Zinn-(II)-diethylhexoat Zinn-(II)-dioctoat, Zinn-(II)-dilaurat und Dialkylzinn-(IV)-salzen von organischen Carbonsäuren, z.B. Dibutyl-zinndiacetat, Dibutylzinndilaurat, Dibutylzinn-maleat und Dioctylzinn-diacetat.

[0030] Bei den verwendeten Polyurethanen kann es sich um kompaktes oder zelliges Polyurethan handeln. Bevorzugt handelt es sich um zelliges Polyurethan, wobei die Herstellung von zelligem Polyurethan durch Zugabe von Treibmittel erfolgt. Als Treibmittel (d) können allgemein bekannte chemisch oder physikalisch wirkende Verbindungen eingesetzt werden. Als chemisch wirkendes Treibmittel kann bevorzugt Wasser eingesetzt werden. Beispiele für physikali-

sche Treibmittel sind beispielsweise (cyclo)aliphatische Kohlenwasserstoffe, vorzugsweise solche mit 4 bis 8, besonders bevorzugt 4 bis 6 und insbesondere 5 Kohlenstoffatomen, teilhalogenierte Kohlenwasserstoffe oder Ether, Ketone oder Acetate. Die unterschiedlichen Treibmittel können einzeln oder in beliebigen Mischungen untereinander zum Einsatz kommen. Besonders bevorzugt wird nur Wasser als Treibmittel eingesetzt. Sofern physikalische Treibmittel verwendet werden, ist es bevorzugt, dass diese in einer Menge von < 0,5 Gew.-%, bezogen auf das Gewicht der Komponente (b), eingesetzt werden.

ř

[0031] Die Menge der eingesetzten Treibmittel richtet sich nach der angestrebten Dichte der Schaumstoffe.

[0032] Die Umsetzung erfolgt gegebenenfalls in Anwesenheit von (e) Hilfs- und/oder Zusatzstoffen, wie z.B. Füllstoffen, Zellreglem, Formtrennmittel, Pigmenten, oberflächenaktiven Verbindungen und/oder Stabilisatoren gegen oxidativen, thermischen oder mikrobiellen Abbau oder Alterung.

[0033] Zur Herstellung der Polyurethane werden im allgemeinen die Polyurethansystemkomponenten, d.h. die Polyisocyanate (a) und die Polyole (b) in solchen Mengen zur Umsetzung gebracht, dass das Äquivalenzverhältnis von NCO-Gruppen von (a) zur Summe der reaktiven Wasserstoffatome von (b) bevorzugt 0,7 bis 1,5:1, besonders bevorzugt 0,9 bis 1,2:1 und insbesondere 1 bis 1,15:1, beträgt.

[0034] In einer bevorzugten Ausführungsform wird das Polyurethansystem so eingestellt, dass sich ein offenzelliger Schaumstoff als Polyurethanmatrix bildet. Bevorzugt weist der verwendete Polyurethanschaumstoff eine Offenzelligkeit von mehr als 50 %, mehr bevorzugt von 80 bis 100 %, besonders bevorzugt von 90 bis 100 %, gemessen nach DIN EN 250 7231, auf.

[0035] Das erfindungsgemäße Formteil findet im allgemeinen zur Herstellung von Karosserieaußenteilen für Verkehrsmittel, wie Kraftfahrzeuge, Flugzeuge, Schiffe, und Schienenfahrzeuge, Verwendung, beispielsweise zur Herstellung Dachmodulen, Kotflügel, Endkantenklappen und Kofferraumdeckeln. Bevorzugt ist die Verwendung der erfindungsgemäßen Formteile zur Herstellung von Dachmodulen.

[0036] Die Verfahren zur Herstellung der erfindungsgemäßen Verbundelemente umfassen hierbei folgende Schritte:

- A) Einlegen einer Folie (i) in ein geöffnetes Formwerkzeug,
- B) Einbringen von Polyurethansystemkomponenten in das Formwerkzeug auf die eingelegte Folie (i),
- C) Schließen des Formwerkzeugs und Reaktion der eingebrachten Polyurethansystemkomponenten zu einem Polyurethan (ii), und
- D) gegebenenfalls Abtrennen von überstehender Folie,

dadurch gekennzeichnet, dass das Einbringen der

Polyurethansystemkomponenten im Schritt (B) derart erfolgt, dass ein 10 bis 300 mm breiter Randstreifen auf der Folienoberfläche nicht von Polyurethansystemkomponenten benetzt wird, wobei sich die Breite des Randstreifens auf den Rand des resultierenden Verbundelements bezieht.

[0037] Üblicherweise wird in Schritt (A) eine Folie in die Formunterhälfte eines Formwerkzeuges eingelegt. Es ist bevorzugt, dass es sich hierbei um eine vorgeformte Folie handelt. d.h. die Folie weist bereits die Form des Formwerkzeuges auf. Das Vorformen kann durch übliche Vorformverfahren, beispielsweise durch Tiefziehen, insbesondere Vakuumtiefziehen, durchgeführt werden.

[0038] Das Einbringen der Polyurethansystemkomponenten kann beispielsweise durch Handguss, durch Hochdruck- oder Niederdruckmaschinen in offenen Formwerkzeugen durchgeführt werden. Geeignete PU-Verarbeitungsmaschinen sind handelsüblich erhältlich (z.B. Fa. Elastogran, Isotherm, Hennecke, Krauss Maffei u.a.). Die Polyurethansystemkomponenten werden auf die bereits eingelegte Folie aufgebracht.

[0039] In einer bevorzugten Ausführungsform halten die PUR-Dosierungsanlagen im allgemeinen folgende Parameter ein: Austragsleistung Polyolkomponente:

100 g/s bis 400 g/s, besonders bevorzugt 150 bis 250 g/s;

Austragsleistung Isocyanat:

100 g/s bis 400 g/s, besonders bevorzugt 150 g/s bis 250 g/s:

Komponentendrücke im Hochdruckkreislauf:

Isocyanat: 120 bis 200 bar; Polyol: 120 bis 200 bar;

Komponentendruck in den Vorratsbehältern:

1,5 bis 4,5 bar;

Temperatur der Polyolkomponente im Vorlagebehälter:

15°C bis 50°C, bevorzugt 20°C bis 35°C;

Temperatur der Isocyanatkomponente im Vorlagebehälter:

15°C bis 50°C, bevorzugt 20°C bis 35°C.

[0040] Bei der Verarbeitung mit Polyurethan-Maschinen ist es auch vorteilhaft, wenn während der Verarbeitung die Vorlagebehälter unter vermindertem Druck stehen.

[0041] Erfindungswesentlich ist, dass das Einbringen der Polyurethansystemkomponenten im Schritt (B) derart erfolgt, dass ein 10 bis 300 mm, bevorzugt 25 bis 250 mm, mehr bevorzugt 20 bis 200 mm, insbesondere 50 bis 200 Millimeter (mm) breiter Randstreifen auf der Folienoberfläche nicht von Polyurethansystemkomponenten benetzt wird, wobei sich die Breite des Randstreifens auf den Rand des resultierenden Verbundelements bezieht.

[0042] Veranschaulicht wird dieser erfindungswesentliche Schritt durch die Fig. 1 und 2. Fig. 1 stellt eine erfindungsgemäße Verfahrensanordnung dar, Fig. 2 veranschaulicht ein bisher im Stand der Technik übliches Verfahren.

[0043] In den Fig. 1 und 2 bedeutet:

- 1 Folie (i)
- 2 Polyurethansystemkomponenten, enthaltend Fasern
- 3 Formwerkzeug (Unterteil)
- 4 Schnittstelle, an der die überstehenden Folie des im Verfahrensschritt (C) entnommenen Verbundelements abgetrennt wird
- 5 Von Polyurethansystemkomponenten unbenetzter Randstreifen.

[0044] Nachdem in Schritt (B) die Polyurethansystemkomponenten eingebracht wurden, wird in Schritt (C) das Formwerkzeug geschlossen und es erfolgt eine Reaktion der eingebrachten Polyurethansystemkomponenten zu einem Polyurethan (ii).

[0045] Aus verfahrenstechnischer Sicht ist es oft wünschenswert, wenn die Folie (i) über die Abmessungen des im Verfahren hergestellten (=resultierenden) Verbundelements hinausreicht. In diesem Fall wird bevorzugt in einem Schritt (D) die überstehende Folie vom resultierenden Verbundelement abgetrennt.

[0046] Der im Schritt (B) angegebene Randstreifen von 10 bis 300 mm bezieht sich folglich auf den Abstand vom Rand des resultierenden Bauteils. Beispielsweise entsteht in Fig. 1 der Rand durch Abtrennen der überstehenden Folie an Stelle mit 4 gekennzeichneten Stelle.

[0047] In einer bevorzugten Ausführungsform wird im Schritt (B) mit dem Einbringen der Polyurethansystemkomponenten im Mittelbereich des Formwerkzeuges begonnen (Schussbeginn) zum Randbereich der Form aufgehört (Schussende), dies gewährleistet ein besonders vorteilhaftes Verdrängen der Luft unter der Folie zum Rand hin.

[0048] Durch das erfindungsgemäße Verfahren wird eine vorteilhafte homogene Dichteverteilung im Bauteil erzielt, da nicht die im Stand der Technik üblicherweise auftretende Verdichtung des Schaums zum Kavitätsrand stattfindet. In einer bevorzugten Ausführungsform weisen die aus dem erfindungsgemäßen Verfahren resultierenden Verbundelemente eine Dichteverteilung auf, wobei innerhalb des Verbundelements der Unterschied zwischen der Stelle mit der größten Dichte zu der Stelle mit der geringsten Dichte maximal 250 g/L (Gramm pro Liter), bevorzugt weniger als 200 g/L, mehr bevorzugt weniger als 50 g/L aufweist.

[0049] Als Formwerkzeuge zur Herstellung der Produkte können übliche und kommerziell erhältliche Werkzeuge eingesetzt werden, deren Oberfläche beispielsweise aus Stahl, Aluminium, Emaille, Teflon, Epoxyharz oder einem anderen polymeren Werkstoff besteht. Bevorzugt sollten die Formwerkzeuge temperierbar, um die bevorzugten Temperaturen einstellen zu können, verschließbar und bevorzugt zur Ausübung eines Druckes auf das Produkt ausgerüstet

sein. Die Temperatur des Formwerkzeugs beträgt vorzugsweise 30 bis 90°C, weiter bevorzugt von 40 bis 60°C. Bei der Umsetzung von Polyisocyanat-Polyadditionsprodukten wird eine Temperatur der Ausgangskomponenten von vorzugsweise 15 bis 50°C, besonders bevorzugt 20 bis 35°C bevorzugt. Die Aushärtung der Polyisocyanat-Polyadditionsprodukte (Schritt F) erfolgt bevorzugt in einer Zeit von üblicherweise 0,5 bis 10 Minuten, besonders bevorzugt 1,5 bis 4 Minuten.

[0050] Eine bevorzugte Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens sieht vor, die Ausgangskomponenten bzw. das Reaktionsgemisch für den Schaumkern mit einem robotergeführten Mischkopf in das Formwerkzeug einzubringen. Diese Verfahrensweise bringt den Vorteil, dass die Ausgangskomponenten für den Schaumstoff in reproduzierbarer Weise in die Form eingebracht werden, was bei einer Einbringung von Hand nicht immer gewährleistet ist. Ein sehr gleichmäßiger und vor allem großflächiger Eintrag der Ausgangskomponenten bzw. des Reaktionsgemisches in die Form kann erreicht werden, indem eine Fächerdüse zum Einbringen der Ausgangskomponenten in die Form eingesetzt wird. Durch einen großflächigen Eintrag des flüssigen Reaktionsgemisches kann die Eintragzeit und somit die gesamte Zykluszeit reduziert werden.

[0051] Die Erfindung soll durch nachfolgendes Beispiel veranschaulicht werden.

#### **Beispiele**

[0052] Als Folie (i) wurde eine tiefgezogene, zweischichtige, coextrudierte, thermoplastische Folie aus PMMA und ASA/PC verwendet. Die zu hinterschäumende Seite der Folie wurde vor dem Einlegen in das Formwerkzeug beflammt. Anschließend wurde die beflammte Folie in ein geöffnetes Formwerkzeug im Werkzeugunterteil der LFI-Anlage eingelegt, wobei das Werkzeugunterteil auf ca. 36 bis 45°C beheizt war. Anschließend wurden Polyurethansystemkomponenten nach dem LFI-Verfahren eingetragen. Der Eintrag der mit PUR benetzten Glasfasern erfolgte in programmierten Bahnkurven durch einen Roboter mit LFI-Mischkopf und dazugehörigem Faserschneidwerk.

[0053] In Beispiel 1 erfolgte der Eintrag so, dass die Polyurethansystemkomponenten einen 150 mm breiten Randstreifen auf der Folienoberfläche nicht benetzen, wobei sich die Breite des Randstreifens auf den Rand des resultierenden Verbundelements bezieht (siehe Fig. 1).

[0054] In Vergleichsbeispiel 2 erfolgte der Eintrag so, dass kein Randstreifen freigelassen wurde (siehe Fig. 2).

[0055] Als PUR-System wurde Elastoflex® E 3509 und daraus resultierende Entwicklungssysteme (Elastogran GmbH) eingesetzt, das 10 bis 40 Gew.-% Glasfasern enthielt. Die Eintragszeit betrug zwischen 15 und 30 Sekunden (sec). Nach Beendigung des

Eintrag der PUR benetzten Glasfaser wurde das Werkzeug für eine Zeit von 100 bis 300 sec geschlossen. Nach Ablauf der Reaktionszeit wurde das Werkzeug geöffnet und das hergestellte Bauteil entformt und die überstehende Folie entfernt.

[0056] Eine optische Überprüfung der resultierenden Verbundelemente zeigte keine Dellen in Beispiel 1 und deutliche Dellenbildung in Vergleichsbeispiel 2, wobei sich etwa 25 Dellen pro m² mit einer Größe von jeweils ca. 50 mm Durchmesser abgezeichnet haben.

#### Patentansprüche

- 1. Verfahren zur Herstellung eines Verbundelementes, aufgebaut aus
- i) einer Folie und
- ii) einer Schicht aus faserverstä:ktem Polyurethan, umfassend die Schritte
- A) Einlegen einer Folie (i) in ein geöffnetes Formwerkzeug,
- B) Einbringen von Polyurethansystemkomponenten in das Formwerkzeug auf die eingelegte Folie (i),
- C) Schließen des Formwerkzeugs und Reaktion der eingebrachten Polyurethansystemkomponenten zu einem Polyurethan (ii), und
- D) gegebenenfalls Abtrennen von überstehender Folie.

dadurch gekennzeichnet, dass das Einbringen der Polyurethansystemkomponenten im Schritt (B) derart erfolgt, dass ein 10 bis 300 mm breiter Randstreifen auf der Folienoberfläche nicht von Polyurethansystemkomponenten benetzt wird, wobei sich die Breite des Randstreifens auf den Rand des resultierenden Verbundelementes bezieht.

- Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass im Schritt (B) die Polyurethansystemkomponenten zusammen mit Glasfasem gemäß dem LFI-Verfahren (Long-Fiber-Injection) eingebracht werden.
- 3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass es sich bei dem Verbundelement um ein Karosserieaußenteil, insbesondere ein Dachmodul, handelt.
- 4. Dellenfreies Verbundelement, erhältlich nach einem Verfahren gemäß einem der Ansprüche 1 bis
- 5. Verwendung eines Verbundelementes nach Anspruch 4 zur Herstellung von dellenfreien Karosserieaußenteilen.

Es folgen 2 Blatt Zeichnungen

## Anhängende Zeichnungen

